

С 7 1 6 2 7 5 - /

На правах рукописи

ТАХАВУТДИНОВ РУСТАМ ГУМЕРОВИЧ

**ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ И МЕТОДЫ ПОВЫШЕНИЯ
ЭФФЕКТИВНОСТИ ПРОМЫШЛЕННЫХ ПОЛИМЕРИЗАТОРОВ
В ПРОИЗВОДСТВЕ СИНТЕТИЧЕСКИХ КАУЧУКОВ**

05.17.08 – Процессы и аппараты химической технологии

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
доктора технических наук

Казань - 2000 г.

Работа выполнена в Казанском государственном технологическом университете

Научные консультанты:

доктор химических наук, профессор Дьяконов Г.С.,

заслуженный деятель науки РФ,

доктор химических наук, профессор Минскер К.С.

Официальные оппоненты:

д.т.н., профессор Кольцова Э.М.

д.т.н., профессор Емельянов В.М.

д.т.н., доцент Николаев А.Н.

Ведущая организация:

ГосНИИХИ (г. Казань)

Защита состоится 30 июня 2000 г. в 14 часов на заседании диссертационного совета Д 063.37.02 в Казанском государственном технологическом университете по адресу: 420015, Казань, ул. К.Маркса, 68, аудитория А-330, зал заседаний Ученого совета.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Казанского государственного технологического университета.

Автореферат разослан 30 мая 2000 г.

**НАУЧНАЯ БИБЛИОТЕКА
КФУ**



0000947727

Ученый секретарь диссертационного совета,
доктор технических наук,
профессор

A handwritten signature in dark ink, appearing to be 'A. G. Laptev'.

А. Г. Лаптев

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы.

При проведении процессов полимеризации в производстве синтетических каучуков возникают две основные проблемы, во-многом лимитирующие производительность аппаратов и влияющие на качество получаемого продукта. Первое – это необходимость поддержания температуры полимеризатора в строго определенном узком интервале, принимая во внимание то, что процессы полимеризации сопровождаются выделением значительного количества теплоты химической реакции. Второе – это необходимость интенсивного смешения исходных компонентов с целью создания одинаковых условий для синтеза и получения однородного по составу качественного продукта. Данная диссертационная работа связана с кардинальным решением обеих этих проблем.

Наиболее часто реакторы охлаждаются через рубашку, однако теплоотвод в этом случае затрудняется низким коэффициентом теплоотдачи из-за сложности перемешивания вязкой среды и возможным налипанием полимера на теплопередающие поверхности. Однако наряду с этим широко распространенным способом, существует метод охлаждения, заключающийся в частичном испарении компонентов из реакционного объема, то есть использовании скрытой теплоты фазового перехода. При этом отходящая газовая смесь может полностью или частично конденсироваться и подаваться обратно в реактор в виде возвратного конденсата и циркуляционного газа. Такой высокоэффективный способ охлаждения в производстве полимеров используется при получении полистирола, низкомолекулярного полиизобутилена, этилен-пропиленовых синтетических каучуков. В последнее время интерес к подобному методу поддержания температурного режима экзотермических реакторов возрос как со стороны исследователей, так и со стороны производителей. В связи с этим актуально развитие теоретических основ расчета подобных технологических процессов и их математическое моделирование.

Общая рентабельность химических производств во многом определяется стоимостью оборудования и затратами на обслуживание и ремонт основных узлов, включая реакторы, которые составляют центральное звено химико-технологической схемы. Для снижения подобных затрат необходимо стремиться использовать аппараты как можно меньшего объема, которые способны сочетать высокую производительность, простоту изготовления и обслуживания и безопасность эксплуатации. Это обуславливает актуальность разработки

высокоэффективных малогабаритных устройств — реакторов, предреакторов, смесителей и т.д.

С другой стороны, традиционно используемые аппараты большого объема с механическими перемешивающими устройствами в ряде случаев не могут обеспечить требуемой степени однородности полей концентраций. При промышленном получении полимеров возникают дополнительные сложности перемешивания, связанные с высокой вязкостью растворов полимеров, а также требованиями безопасности реактора с подвижными внутренними узлами при работе с высокотоксичными и взрывоопасными веществами. В последнее время пристальное внимание уделяется малогабаритным реакторам - смесителям, которые не содержат внутренних подвижных элементов и способны обеспечить интенсивное смешение по всему объему исключительно за счет развитого турбулентного движения. Среди них наиболее технологичными являются трубчатые турбулентные аппараты цилиндрического и диффузор — конфузорного типа, которые были предложены чл.-корр. РАН Берлиным А.А. и академиком АН РБ проф. Минскером К.С., который является научным консультантом по данной диссертации. Такие аппараты весьма эффективны как для проведения быстрых полимеризационных процессов, так и для интенсивного смешения с целью гомогенизации жидкости. Подобные реакторы-смесители сочетают высокую производительность при малом объеме, они просты в изготовлении и эксплуатации и обеспечивают безопасность при работе с высокотоксичными и взрывоопасными веществами. Однако недостаточное развитие теоретической базы для их внедрения препятствует расширенному использованию подобных устройств в химической промышленности. Это обуславливает актуальность научной тематики, связанной с созданием теоретического фундамента для внедрения высокоэффективных малогабаритных аппаратов в производство и решением важной народно-хозяйственной проблемы экономии ресурсов и обеспечения безопасности производства в современных условиях.

Таким образом, разработка научных основ методов повышения эффективности работы промышленных полимеризаторов, во-первых, за счет интенсификации охлаждения реакционной смеси путем частичного испарения ее компонентов и, во-вторых, за счет обеспечения однородности реакционной смеси при использовании комплекса малогабаритных трубчатых аппаратов - предреакторов и смесителей, является актуальной задачей.

Диссертационная работа выполнялась в рамках 11 государственных программ научно-технического развития, среди которых:

- Грант Президента Российской Федерации №96-15-97179 по теме «Моделирование процессов полимеризации при производстве синтетических каучуков» (1997-1999гг.)
- Грант Президента Российской Федерации №00-15-99-438 по тематике развития научных основ производства широкого ассортимента синтетических каучуков (с января 2000г. по настоящее время)
- Государственная научно-техническая программа 003 «Научные исследования высшей школы в области химии и химических продуктов», раздел «Общая и техническая химия» по 2 темам в области разработок процессов получения синтетических каучуков
- Государственная научно-техническая программа «Ресурсосберегающие экологически чистые процессы в металлургии и химии», подраздел «Проект «Турбулентный реактор»
- Программа Республики Татарстан по развитию приоритетных направлений науки по теме №19-12/99 (Ф) «Научные основы технологических процессов производства синтетических каучуков на предприятиях нефтехимического комплекса Республики Татарстан»

Целью работы является развитие теоретических основ и разработка научно-обоснованных методов интенсификации работы промышленных полимеризаторов путем использования эффективного внутреннего охлаждения за счет испарения компонентов из реакционного объема и оснащения их высокоэффективными трубчатыми реакторами-смесителями, в рамках которой решались следующие основные задачи:

- установление основных закономерностей процесса полимеризации в реакторе с охлаждением за счет частичного испарения компонентов из реакционного объема и создание адекватной математической модели, позволяющей рассчитывать основные технологические характеристики подобного аппарата
- развитие теоретических основ расчета и проектирования малогабаритных трубчатых турбулентных аппаратов, разработка методов их технологического расчета, оптимизация параметров промышленных аппаратов данного типа и выработка научно-обоснованных технических решений при внедрении их в производство.

Научная новизна.

- Разработана математическая модель реактора-полимеризатора с охлаждением за счет частичного испарения компонентов из реакционного объема с учетом основных влияющих факторов, включая перегрев жидкости, наличие возвратного конденсата и циркуляционного газа и установлены основные закономерности протекания процесса полимеризации в таком аппарате. Проведены исследования устойчивости работы подобного реактора и определено число стационарных состояний.
- Для трубчатых аппаратах диффузор-конфузорного типа численным решением осредненных по Рейнольдсу уравнений движения сплошной среды и К- ϵ модели турбулентности впервые получены поля следующих величин: осевой и радиальной скорости, давления, удельной кинетической энергии турбулентности, ее диссипации, а также других величин, которые выражаются через эти искомые функции (эффективный коэффициент вязкости, характерные времена турбулентного смешения и пр.). Выявлены закономерности, обуславливающие преимущества трубчатых реакторов и смесителей диффузор-конфузорной конструкции по сравнению с аппаратами цилиндрического типа.
- Установлены ранее неизвестные количественные зависимости характеристик потока и турбулентного смешения от геометрии аппарата диффузор-конфузорного типа (соотношения диаметров диффузора и конфузора, длины секции и диффузор-конфузорного угла). Исходя из критерия минимума времени турбулентного смешения, впервые проведена математическая оптимизация геометрических параметров турбулентного трубчатого аппарата данного типа. Путем обработки обширных данных численного расчета получены новые приемлемые для практических инженерных расчетов аналитические формулы для вычисления осредненных по объему диффузор-конфузорного аппарата характеристик турбулентности и смешения (удельной кинетической энергии турбулентности, ее диссипации, коэффициента турбулентной диффузии, характерных времен микросмешения, мезосмешения и макросмешения)

Достоверность научных положений, результатов и выводов диссертации обеспечивается использованием фундаментального описания явлений переноса, общепринятых подходов к моделированию процессов и аппаратов химической технологии, подтверждением теоретических результатов соответствующими экспериментальными

данными и успешной промышленной эксплуатацией аппаратов, рассчитанных и спроектированных на основе результатов диссертационной работы.

Практическая значимость.

- Разработанная математическая модель позволяет с достаточной точностью прогнозировать температурный режим работы реактора с охлаждением за счет частичного испарения компонентов из реакционного объема и выбирать рациональные технологические параметры. Для конкретного производственного процесса получения каучука СКЭПТ рассчитаны допустимые диапазоны технологических параметров получения более десяти различных марок СКЭПТ, отличающихся условиями синтеза.
- Результаты диссертации позволяют выбрать оптимальное соотношение геометрических размеров аппарата диффузор-конфузорного типа для обеспечения режима наиболее эффективного смешения в нем в производственных условиях.
- Полученные аналитические формулы для вычисления характеристик потока и турбулентного смешения составляют основу инженерного метода расчета диффузор-конфузорных реакторов-смесителей, надежность которого подтверждена успешной промышленной эксплуатацией аппаратов, спроектированных на основе этого расчета.
- Полученные в диссертации результаты явились научной базой для выработки рекомендаций по конструированию и внедрению малогабаритных трубчатых турбулентных аппаратов в промышленное производство этилен-пропиленового синтетического каучука (СКЭПТ) на заводе СК АО "Нижнекамскнефтехим". В приложенном к диссертации акте о внедрении указано, что на основе комплекса исследований при участии диссертанта была создана, внедрена и в 1999 год / полностью освоена новая технология производства СКЭПТ с использованием высокоэффективных малогабаритных трубчатых турбулентных аппаратов диффузор-конфузорной конструкции. Применение системы трубчатых турбулентных реакторов-смесителей диффузор-конфузорного типа в производстве СКЭПТ в 1999 г. позволило:
 - обеспечить распределение и подачу реакционной смеси одинакового состава в параллельно работающие объемные реакторы-полимеризаторы, что гарантирует однородность качества получаемого конечного продукта в разных аппаратах;
 - экономить электроэнергию (более 200 тысяч кВт ч в год), снизить потребление воды (не менее, чем на 10%), катализатора (на 15-25%)

-повысить до 50% от общего объема выпуск синтетического каучука СКЭПТ по ТУ 2294-022-05766801-94 по сравнению с 20% выпуска такого же каучука по старой технологии и, как следствие, заметно уменьшить объем выпуска низкосортного каучука по ТУ 2294-035-05766801-95 (СКЭПТ-С,Г), что определило экономический эффект более 2,5 млн.руб/год.

Апробация работы. Материалы диссертации докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях:

- II-ая Российская национальная конференция по теплообмену (Москва 1998г.)
- XVI-ый Менделеевский съезд по общей и прикладной химии (Санкт-Петербург 1998г.)
- II-ой, III –ий и IV-ый Минские Международные форумы по теплообмену (Минск 1992, 1996, 2000гг.)
- Всероссийское совещание «Турбулизация потоков в трубчатых реакторах как основа создания высокоэффективных промышленных технологий повышенной экологической безопасности. Фундаментальные исследования, практические разработки, опыт промышленного внедрения» (Уфа 2000г.)
- IX-ая Международная конференция молодых ученых по химии и химической технологии (Москва 1995г.)
- II-ая Республиканская научная конференция молодых ученых и специалистов (Казань 1996г.)
- IV-ая и V-ая Международные конференции по интенсификации нефтехимических процессов (Нижнекамск 1996, 1999 гг.)
- XII-ая Международная научная конференция «Математические методы в технике и технологиях» (Новгород 1999г.)
- V-ая Международная научная конференция «Методы кибернетики химико-технологических процессов» (Москва-Казань 1999г.)
- VIII-th International PHOENICS User Conference (Luxembourg 2000)
- Международная научная конференция «Химия и химические технологии – настоящее и будущее» (Стерлитамак 1999г.)
- Ежегодные итоговые Научные сессии Казанского государственного технологического университета (Казань, 1997-2000гг.)

Публикации. По теме диссертации опубликовано 39 работ, включая статьи, труды и тезисы научных конференций и свидетельства на полезную модель.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, 6 глав, выводов, приложения и изложена на 258 страницах, включая 32 рисунка, 7 таблиц и библиографический список из 208 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цели и задачи исследований и дан краткий обзор содержания глав диссертации.

В первой главе приведен детальный обзор научной литературы в областях, охватывающих тематику диссертации в части использования реакторов с кипением в химической промышленности, моделирования химических реакторов, процессов смешения в турбулентных потоках, использования трубчатых турбулентных аппаратов и некоторых смежных вопросов, отмечены основные направления и тенденции.

Рассмотрены принципиальные схемы процессов получения синтетических каучуков и других технологических процессов, в которых используется отвод теплоты реакции за счет испарения компонентов реакционной смеси. Сделан вывод о том, что такой способ отвода тепла имеет большие перспективы для промышленного использования.

Кроме того, в этой главе приведен обзор современных работ отечественных и зарубежных авторов по следующим направлениям: физико-химические основы процесса объемного кипения, устойчивость химических реакторов, особенности математического моделирования реакторов-полимеризаторов.

Для оценки характерного времени турбулентного смешения необходимо знать характеристики турбулентного потока. Предложено множество различных оценок времени смешения t_{mix} в турбулентных потоках; специальные обзоры работ по теме, классификацию моделей смешения и подробное изложение современного состояния проблемы можно найти в литературных источниках, приведенных в библиографическом списке диссертации. Поскольку в данной работе турбулентное движение жидкости описывается осредненными по Рейнольдсу уравнениями движения сплошной среды с использованием K - ϵ замыкания, то делается акцент на тех оценках, в которых характерное время смешения выражается через удельную кинетическую энергию турбулентности K и ее диссипацию ϵ .

Характерное время турбулентного макросмешения оценивается по формуле:

$$t_{mikro} = l^2/D_T, \quad (1)$$

где l представляет собой характерный линейный размер области, в которой требуется создать однородное поле концентрации. Если коэффициент турбулентной диффузии D_T принять равным кинематическому коэффициенту турбулентной вязкости, а последнее выразить через K и ε , то формула (1) примет вид:

$$t_{makro} = 11.1 \varepsilon l^2 / K^2 \quad (2)$$

Если лимитирующими являются процессы микросмешения на Колмогоровском масштабе, то необходимо пользоваться другими оценочными выражениями. В этом случае достаточно часто используется модель захвата (engulfment model), согласно которой характерное время микросмешения находится по формуле:

$$t_{mikro} = 17.3 (\nu/\varepsilon)^{0.5} \quad (3)$$

В ряде случаев гомогенизация среды лимитируется процессами обмена между более крупными турбулентными вихрями и находящимися внутри них более мелкими. Процессы смешения на этом уровне принято называть мезосмешением, характерное время которого оценивается по формуле:

$$t_{mezo} = (l^2/\varepsilon)^{1/3} \quad (4)$$

Сопоставление всех указанных выше характерных времен позволяет выявить лимитирующий механизм выравнивания поля концентрации. Из величин, вычисляемых по формулам (2-4), необходимо выбрать наибольшую и сравнить ее значение с характерным временем химической реакции. Если последнее оказывается значительно больше, то процесс химического превращения протекает в кинетической области. Если же рассматривается смеситель для гомогенизации среды без протекания химического превращения, то лимитирующее время смешения необходимо сопоставлять со средним временем пребывания в аппарате.

Литературный обзор показал ограниченность научно-обоснованных подходов в области проведения процессов полимеризации при кипении реакционной смеси и недостаточную степень развития научной базы для расчета и проектирования трубчатых аппаратов.

Во второй главе рассматривается математическая модель процесса полимеризации, протекающего в реакторе с теплоотводом за

счет кипения реакционной смеси. В этой главе для выработки подходов к моделированию таких процессов рассмотрен достаточно простой случай - процесс полимеризации одного мономера в инертном растворителе; предполагается, что процесс полимеризации в данном случае протекает в кинетической области.

Математическая модель такого процесса построена в предположении идеального смешения и основывается на совместном решении следующих уравнений, записанных в дифференциальном виде: материального баланса по компонентам, общего материального баланса, теплового баланса с учетом притока тепла за счет химической реакции и отвода тепла за счет испарения, химической кинетики с учетом зависимости скорости реакции от температуры, фазового равновесия, теплоотдачи для жидкой фазы.

Эти уравнения представляют собой динамическую модель, которую можно использовать для анализа устойчивости работы полимеризатора с кипением реакционной смеси.

Проведенные на основе этой модели численные исследования позволили количественно оценить эффект автотерморегулирования реактора-полимеризатора с теплоотводом за счет кипения.

Далее в работе представлены результаты исследований числа стационарных состояний и устойчивости реактора с теплоотводом за счет кипения. Очевидно, что если бы в процессе объемного кипения не существовало бы перегрева, то температура жидкости в реакторе была бы всегда равна температуре насыщения при давлении, которое поддерживается в аппарате, и это стационарное состояние было бы единственным и устойчивым. Однако наличие перегрева, которое в промышленных условиях иногда может достигать нескольких десятков градусов Цельсия, делает необходимым исследование режимов работы реактора на число стационарных состояний и устойчивость температурных режимов.

Реактор без кипения имеет три стационарных состояния, при этом как минимум одно из них является неустойчивым. Кроме того, из всех трех стационарных состояний оптимальной рабочей температуре соответствует только одно состояние, которое также может быть неустойчивым. Реактор с кипением имеет только одно стационарное состояние.

Результаты исследований устойчивости такого реактора представлены графически в виде фазовых траекторий (Рис.1). На основе формы этих кривых можно сделать вывод о том, что данное состояние является устойчивым. Это является важным преимуществом такого

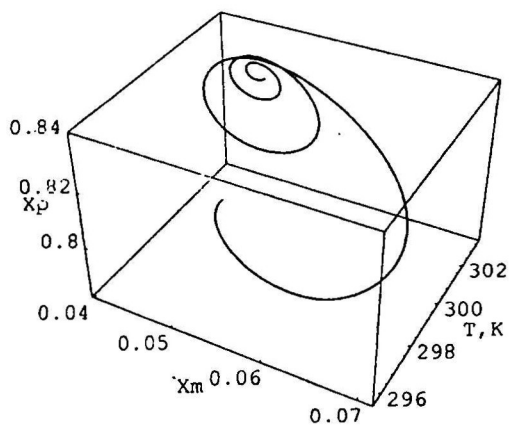
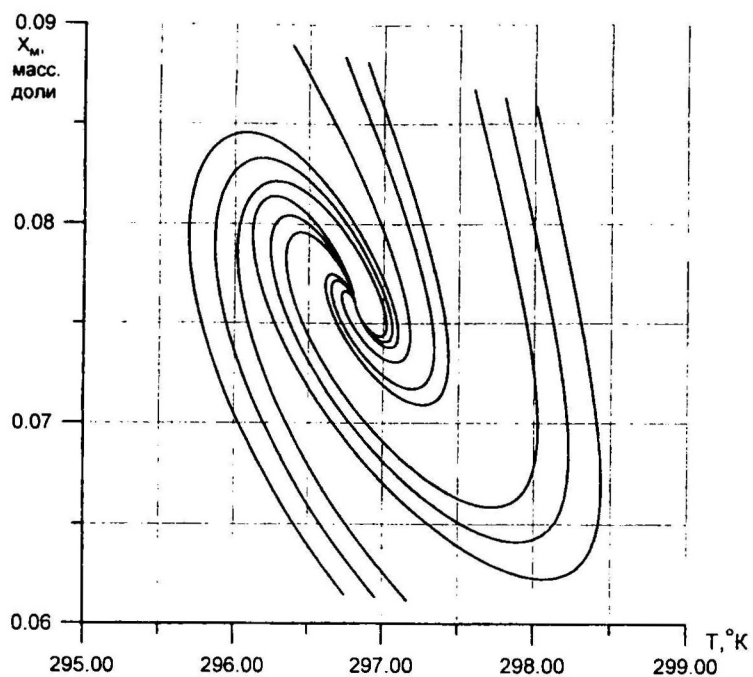


Рис.1. Фазовые траектории реактора с кипением
в проекции на плоскость T - X_m и в пространстве T - X_m - X_p .

способа теплоотвода, т.к. поддержание стабильного температурного режима обеспечивает необходимое качество получаемого продукта.

В третьей главе на основе проведенных исследований предложена конструкция реактора нового типа для проведения процессов полимеризации - это факельный реактор. Данный реактор был разработан как составная часть пилотной установки для получения синтетических каучуков.

Процесс полимеризации в таком реакторе протекает в кинетической области, а теплоотвод осуществляется за счет кипения реакционной смеси. Реактор состоит из двух основных частей: зоны реакции и зоны сепарации. Основная особенность такого реактора состоит в том, что исходный газообразный мономер подается через сопло с высокой скоростью, что позволяет использовать эффект начального участка, характеризуемый эффективной массоотдачей. Это позволяет перевести процесс в кинетическую область, что подтверждено соответствующими оценками.

В четвертой главе излагается математическая формулировка задачи исследования гидродинамики и процессов турбулентного смешения в трубчатых аппаратах, приводятся результаты численного моделирования, их сравнение с экспериментальными данными и сопоставляется эффективность турбулентного смешения в трубчатых аппаратах двух типов: цилиндрическом и диффузор-конфузорном.

Постановка задачи и уравнения математической модели. В качестве инструмента теоретического исследования выбрано численное решение уравнений турбулентного движения сплошной несжимаемой Ньютонической среды с эффективным коэффициентом вязкости $\mu = \mu_r + \mu_M$ с использованием $K-\varepsilon$ модели турбулентности. Эти уравнения в цилиндрической системе координат имеют следующий вид.

Уравнение неразрывности:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial(ru)}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0. \quad (5)$$

Осредненные по Рейнольдсу уравнения Навье-Стокса:

$$\frac{\rho}{r} \frac{\partial(ruu)}{\partial r} + \rho \frac{\partial(uv)}{\partial z} = -\frac{\partial p}{\partial r} - \left(\frac{1}{r} \frac{\partial(r\tau_{11})}{\partial r} - \frac{\tau_{33}}{r} + \frac{\partial \tau_{21}}{\partial z} \right), \quad (6)$$

$$\frac{\rho}{r} \frac{\partial(ruv)}{\partial r} + \rho \frac{\partial(vv)}{\partial z} = -\frac{\partial p}{\partial z} - \left(\frac{1}{r} \frac{\partial(r\tau_{12})}{\partial r} + \frac{\partial \tau_{22}}{\partial z} \right), \quad (7)$$

где компоненты тензора напряжений равны

$$\tau_{11} = -2\mu \frac{\partial u}{\partial r}, \quad \tau_{22} = -2\mu \frac{\partial v}{\partial z}, \quad \tau_{33} = -2\mu \frac{u}{r}, \quad (8)$$

$$\tau_{12} = \tau_{21} = -\mu \left(\frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right). \quad (9)$$

Уравнения K - ε модели турбулентности:

$$\frac{\rho}{r} \frac{\partial(ruK)}{\partial r} + \rho \frac{\partial(vK)}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\mu}{\sigma_K} \frac{r \partial K}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\mu}{\sigma_K} \frac{\partial K}{\partial z} \right) + \mu_T G - \rho \varepsilon, \quad (10)$$

$$\frac{\rho}{r} \frac{\partial(ru\varepsilon)}{\partial r} + \rho \frac{\partial(v\varepsilon)}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\mu}{\sigma_\varepsilon} \frac{r \partial \varepsilon}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\mu}{\sigma_\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) + \mu_T C_1 G \varepsilon / K - C_2 \rho \varepsilon^2 / K, \quad (11)$$

$$G = \left((\tau_{11}^2 + \tau_{22}^2 + \tau_{33}^2) / 2 + \tau_{12}^2 \right) / \mu^2. \quad (12)$$

$$\mu_T = \rho \frac{C_\mu K^2}{\varepsilon} \quad (13)$$

Использованы стандартные параметры K - ε модели турбулентности:

$$C_1 = 1.44, \quad C_2 = 1.92, \quad C_\mu = 0.09, \quad \sigma_K = 1.0, \quad \sigma_\varepsilon = 1.3 \quad (14)$$

Приняты стандартные граничные условия для турбулентного потока.

Принимается, что коэффициент турбулентной диффузии равен кинематическому коэффициенту турбулентной вязкости:

$$D_T = \nu_T = \mu_T / \rho. \quad (15)$$

Численное решение задачи позволило получить по всему объему рассматриваемых аппаратов поля следующих искомых функций: осевой u и радиальной v скорости, давления p , удельной кинетической энергии турбулентности K , ее диссипации ε , а также других характеристик, которые выражаются через эти величины. В частности, важными для нас характеристиками, которые выражаются через эти величины, являются характерные времена турбулентного смешения на различных масштабных уровнях (1)-(4).

Для подтверждения адекватности проведенных расчетов было проведено сравнение полученных нами теоретических результатов с известными экспериментальными данными и расчетами других авторов для канала, изображенного на рис.2а. Проведенное в диссертации сопоставление расчетов с экспериментальными данными и расчетами, выполненными другими исследователями, воспроизводящими те же условия эксперимента, подтверждают адекватность теоретических результатов и позволяют с уверенностью предсказывать характеристики турбулентного течения для других аналогичных условий и каналов аналогичной геометрической формы.

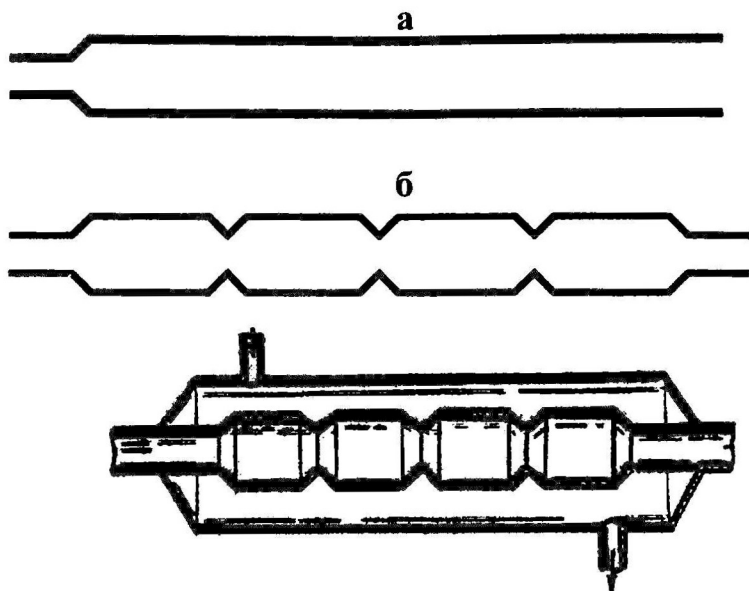


Рис.2. Трубчатые аппараты цилиндрического (а) и диффузор-конфузорного (б) типа

Сравнение результатов расчета для двух типов исследуемых каналов. В трубе постоянного сечения на начальном участке интенсивность турбулентности изменяется по мере удаления от входа. Проведенные в настоящей работе исследования подтверждают данное положение. Рис.3. иллюстрирует изменение характеристик турбулентности по оси аппаратов, изображенных на рис.2. Диффузор - конфузорный канал позволяет поддерживать высокие значения параметров турбулентности по всей длине, в то время как в трубе постоянного сечения наблюдается их резкое снижение на удалении от входа. Таким образом, для обеспечения интенсивного турбулентного смешения по всей длине трубчатого аппарата целесообразно использовать аппараты, изготовленные из нескольких диффузор - конфузорных секций.

Другим недостатком трубчатого реактора постоянного сечения является то, что интенсивность турбулентного смешения в нем зависит от способа и геометрии ввода реагентов. Проведенные численные расчеты свидетельствуют о том, что на характеристики турбулентного

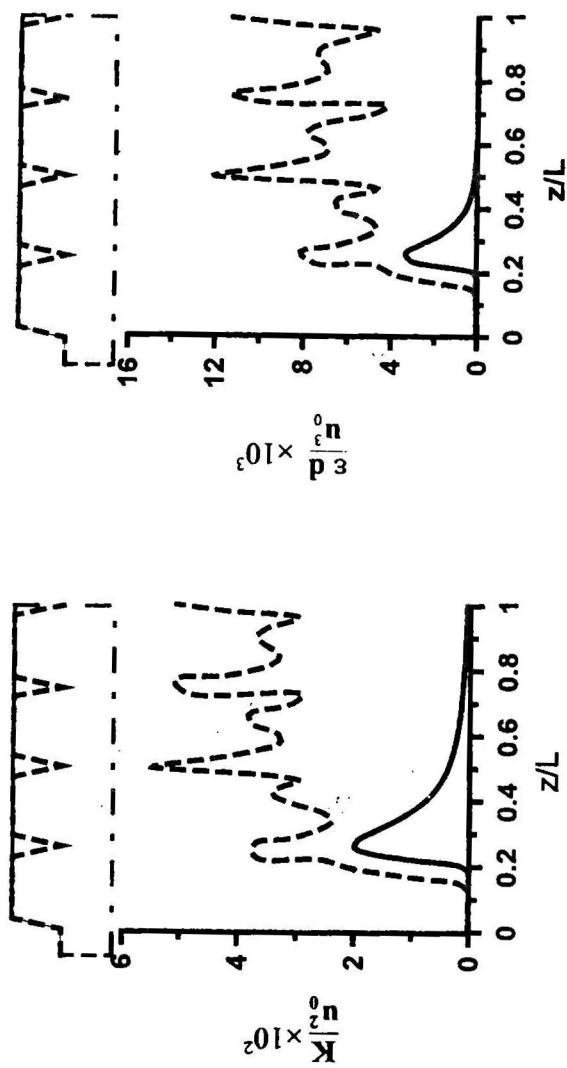


Рис. 3. Изменение удельной кинетической энергии турбулентности и ее диссипации по оси аппарата

смещения в трубе определяющее влияние оказывает геометрия ввода потоков. В противовес этому в диффузор - конфузорном аппарате характеристики турбулентности определяются в первую очередь турбулизацией, возникающей за счет геометрии самого канала, что наглядно иллюстрирует рис.3, на котором вместе с графиками изменения кинетической энергии турбулентности и ее диссипации изображена геометрия исследуемых каналов. Аналогичная картина наблюдается на рис.4, на котором приведено трехмерное изображение распределения коэффициента турбулентной диффузии по объему аппаратов.

В пятой главе на основе численного моделирования получены количественные зависимости характеристик потока и турбулентного смещения от геометрии аппарата (соотношения диаметров диффузора и конфузора, длины секции и диффузор-конфузорного угла), проанализировано влияние физико-химических характеристик среды на характерные времена турбулентного смещения в аппаратах рассматриваемого типа и выявлены преимущества использования реакторов –смесителей диффузор-конфузорной конструкции.

Здесь же проведена оптимизация геометрии реактора-смесителя диффузор-конфузорной конструкции. Оптимальным соотношением геометрических размеров аппарата, отвечающим критерию минимума среднего времени турбулентного смещения, является следующее: отношение диаметров диффузора и конфузора $d_L/d=1.6$, отношение длины секции к диаметру диффузора $L/d_L=1.7$. Эти оптимальные значения мало зависят от угла расширения диффузора, поэтому для практических целей не имеет большого смысла учитывать эту зависимость. Для обеспечения наиболее интенсивного смещения рекомендовано изготавливать промышленные реакторы-смесители с этими конструктивными размерами.

Примененные численные методы анализа турбулентного течения являются сложными для практических инженерных расчетов и требуют проведения длительных компьютерных вычислений. Поэтому на основе анализа физической картины явлений и обработки обширных результатов компьютерных расчетов целесообразно предложить простые и надежные аналитические формулы для приближенного расчета характеристик потока и времен смещения в турбулентном трубчатом реакторе диффузор - конфузорного типа. Эти формулы применимы для так называемой автомодельной по отношению к вязкости области чисел Рейнольдса, гидродинамические условия в которой наиболее благоприятны для эффективного функционирования аппаратов данной конструкции.

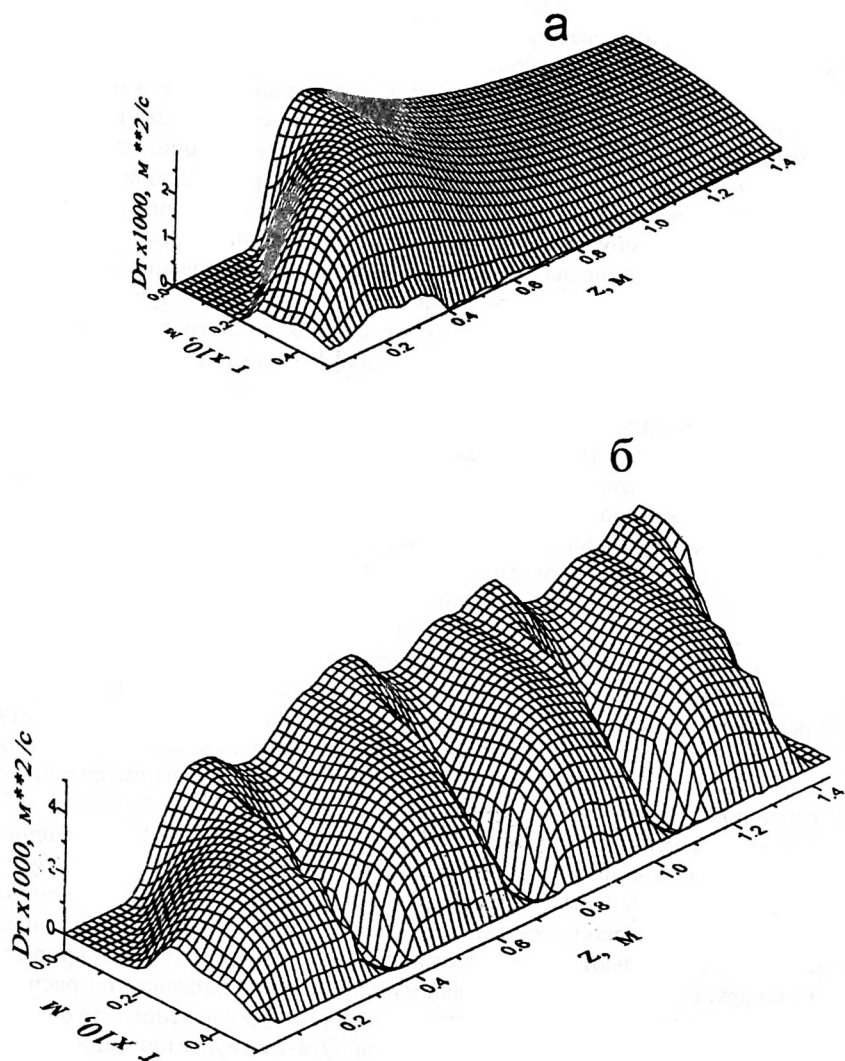


Рис.4. Распределение коэффициента турбулентной диффузии по объему аппаратов цилиндрического (а) и диффузор-конфузорного (б) типа

Автомодельная область. Известно, что в высокотурбулентных потоках вязкость не оказывает влияния на характеристики течения основного объема среды. В этом случае говорят, что течение является автомодельным по отношению к вязкости. Значение критерия Рейнольдса, выше которого наблюдается автомодельная область, во многом определяется геометрией течения. Например, хорошо известно, что при обтекании сферы автомодельная область, в которой коэффициент сопротивления не зависит от числа Рейнольдса a , значит, и от вязкости, наступает при $Re=500$, в то время как при течении в круглых трубах постоянного сечения это значение критерия Рейнольдса на порядки выше ($Re \sim 10^7$).

Так как по сравнению с трубой постоянного сечения в диффузор-конфузорном канале при тех же числах Рейнольдса достигается значительно большая степень турбулизации потока, то можно ожидать, что в последнем автомодельный режим начнет наблюдаться при значительно более низких числах Рейнольдса. Проведенные в настоящей работе численные расчеты полностью подтвердили данное предположение. Установлено, что в диффузор - конфузорном аппарате автомодельный режим наступает при $Re \sim 10^3$. (Это значение несколько ниже при больших углах расширения диффузора ($>45^\circ$), однако для практических расчетов учитывать это не имеет смысла).

Таким образом, данные исследования выявили еще одно важное достоинство аппаратов диффузор – конфузорного типа: в этих аппаратах уже при относительно низких значениях Re наступает автомодельный режим, когда вязкость не оказывает влияния на характеристики турбулентного течения. Это означает возможность успешного осуществления в них процессов, сопровождающихся значительным изменением вязкости среды, что характерно для полимеризационных процессов.

Анализ размерностей и аналитические формулы.

Метод размерностей, который тесно перекликается с теорией подобия, широко применяется для анализа самых разнообразных физических и физико-химических явлений и представляет собой один из основных инструментов приближенного описания сложных процессов в химико-технологических устройствах. Впервые сформулированный на основе интуитивных соображений Фрудом и Рейнольдсом, имена которых носят соответствующие критерии подобия, данный метод в дальнейшем получил научное обоснование и продолжает интенсивно использоваться современными исследователями.

Воспользуемся методом размерностей для анализа характеристик потока и смешения в диффузор - конфузорном канале в автомодельном

режиме ($Re > 10^3$). В этом случае усредненные по всему объему характеристики потока практически не зависят от вязкости, поэтому остаются лишь три величины, от которых они могут зависеть: это плотность ρ , диаметр d и среднерасходная скорость u_0 . Из этих трех величин можно составить следующие единственные комбинации с соответствующими размерностями для средних значений удельной кинетической энергии турбулентности и ее диссипации:

$$K_{cp} \sim u_0^2, \quad \varepsilon_{cp} \sim u_0^3/d, \quad (16)$$

Для того, чтобы заменить в этих формулах знаки пропорциональности на знаки равенства, в них необходимо выставить числовые коэффициенты, которые не могут быть получены методом размерностей. Эти числовые коэффициенты зависят только от соотношения геометрических размеров аппарата и они были найдены путем обработки большого массива данных, полученных численным решением уравнений (5)-(13). Для облегчения инженерного использования численные значения этих коэффициентов для разных значений отношения диаметров диффузора и конфузора, отношения длины секции к диаметру диффузора и различных углов расширения диффузора приведены в виде аппроксимирующих формул:

$$K_{cp} = f_K f^2 u_0^2, \quad \varepsilon_{cp} = f_E f^3 u_0^3/d, \quad (17)$$

где зависимость коэффициентов f_K , f_E от соотношения геометрических размеров d_L/d , L/d_L дается следующими аппроксимирующими зависимостями:

$$f_K = -0.118686 + 0.0194203(L/d_L) - 0.0139844(L/d_L)^2 + \\ + 0.00138267(L/d_L)^3 + 0.125025(d_L/d) + 0.0329399(d_L/d)(L/d_L) - \\ - 0.0021000543(d_L/d)(L/d_L)^2 - 0.0354655(d_L/d)^2 - 0.00514523(d_L/d)^2(L/d_L) \quad (18)$$

$$f_E = -0.22076 + 0.36188(d_L/d) - 0.18572(d_L/d)^2 + 0.031143(d_L/d)^3 + 0.048586(L/d_L) - \\ - 0.00791709(d_L/d)(L/d_L) - 0.0030844(L/d_L)(d_L/d)^2 - 0.0153991(L/d_L)^2 + \\ + 0.00515547(d_L/d)(L/d_L)^2, \quad (19)$$

а зависимость коэффициента f от угла α аппроксимируется следующей формулой:

$$f(\alpha) = 0.11765 + 0.04879\alpha - 0.00119\alpha^2 + 1.37439 \times 10^{-5}\alpha^3 - 5.90026 \times 10^{-8}\alpha^4 \quad (20)$$

Формула для расчета коэффициента турбулентной диффузии:

$$D_{\text{Тр}} = 0.09(f_K^2 f / f_E) u_0 d \quad (21)$$

Формулы для нахождения характерных времен макро-, микро- и мезосмещения:

$$t_{\text{makro}} = 11.1 l^2 (f_E / f_K^2 f) / (u_0 d) \quad (22)$$

$$t_{\text{micro}} = 17.3 (v d / (f_E f^3 u_0^3))^{0.5} \quad (23)$$

$$t_{\text{mezo}} = (l^2 d / (f_E f^3 u_0^3))^{1/3} \quad (24)$$

Область применимости расчетных формул (17)–(24) следующая:

$$d_L/d = 1.2 \div 2.5; \quad L/d_L = 0.5 \div 3.5; \quad \text{tg} \alpha > (d_L - d)/L \quad (25)$$

Таким образом, проведенные исследования выявили еще одно несомненное достоинство трубчатых аппаратов диффузор-конфузорного типа. Оно состоит в том, что в автомобильной области характеристики турбулентного потока и характерные времена смещения в диффузор-конфузорном аппарате находятся по достаточно простым формулам, которые пригодны для практических инженерных расчетов, что значительно упрощает расчет и увеличивает надежность проектирования подобных аппаратов.

В шестой главе изложены результаты применения в промышленном производстве разработанных в диссертации научных подходов к расчету и проектированию высокоэффективных малогабаритных трубчатых турбулентных реакторов-смесителей и технологических процессов с использованием охлаждения экзотермического реактора путем испарения компонентов из реакционного объема.

При получении этилен-пропиленового синтетического каучука в рассматриваемый реактор подается несколько мономеров, часть из которых может быть в жидком, а часть - в газообразном состоянии. Отходящая из реактора парогазовая смесь подается в теплообменник-конденсатор, где частично конденсируется и возвращается в реактор в виде конденсата и циркуляционного газа. Таким образом, объектом моделирования (Рис.5.) является комбинация реактора-полимеризатора и теплообменника - конденсатора.

В данном случае в уравнениях материального баланса учитывается наличие возвратного конденсата и циркуляционного газа:

$$G_I + L_{CG} \cdot Y_{CI} + L_K \cdot X_{KI} - L_G \cdot Y_I - L_R \cdot X_I - \omega_I \cdot V = \frac{dX_I}{dt} \cdot \rho_I \cdot V, \text{ где } I=1, \dots, N-1 \quad (26)$$

$$\sum_{I=1}^{N-1} G_I - L_R = \frac{dM}{d\tau} \cdot \rho_R \cdot V \quad (27)$$

Связующие уравнения для концентраций в жидкости и газе:

$$\sum_{I=1}^N X_I = 1, \quad \sum_{I=1}^{N-1} Y_I = 1 \quad (28)$$

Уравнения химической кинетики:

$$\omega_I = k_I \cdot A \cdot X_I \cdot \rho_R \cdot \exp\left(-\frac{E_I}{k_b \cdot T}\right), \text{ где } I=1, \dots, N-2, \quad \omega_{N-1} = 0 \quad (29)$$

Общее уравнение теплового баланса:

$$\sum_{I=1}^{N-1} c_I \cdot G_I \cdot T_I + \sum_{I=1}^{N-1} (G_I + L_{CG} \cdot Y_{CI} - L_G \cdot Y_I) \cdot r_{AI} + L_K \cdot r_G - L_G \cdot c_G \cdot T_S - L_R \cdot c_R \cdot T + V \cdot \sum_{I=1}^{N-1} H_I \cdot \omega_I = \frac{dT}{d\tau} \cdot c_R \cdot \rho_R \cdot V \quad (30)$$

Уравнения массоотдачи записаны только для жидкой фазы:

$$G_I + L_{CG} \cdot Y_{CI} - L_G \cdot Y_I - \beta_{vLI} \cdot \rho_R \cdot (X_I^* - X_I) = 0 \quad (31)$$

$$L_G \cdot Y_I - L_{CG} \cdot Y_{CI} - \beta_{vLI} \cdot \rho_R \cdot V \cdot (X_I - X_I^*) = 0 \quad (32)$$

Равновесные концентрации, устанавливающиеся на границе раздела фаз определяются из уравнений фазового равновесия:

$$X_I^* = \frac{Y_I}{m_I}, \quad \sum_{I=1}^N X_I^* = 1 \quad (33)$$

Поскольку концентрация полимера в реакционной смеси мала, то его концентрации на границе и в объеме жидкости одинаковы:

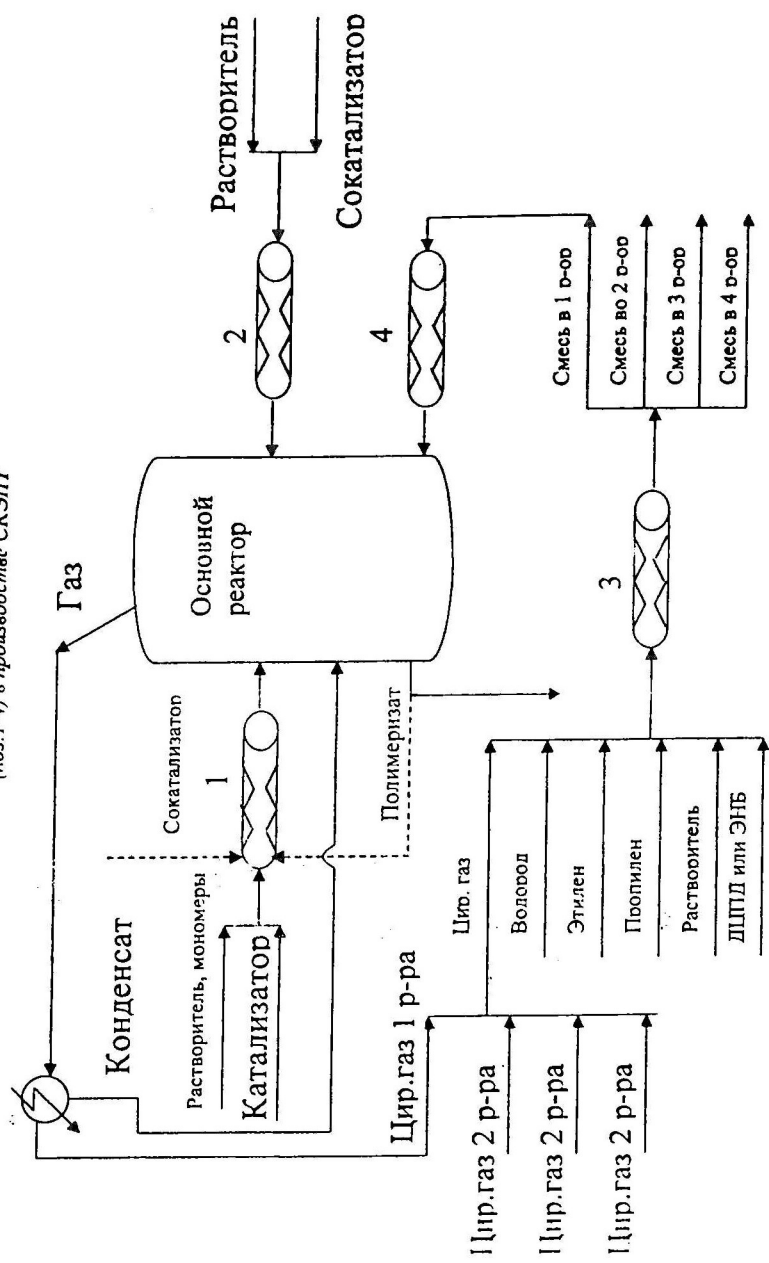
$$X_N^* = X_N \quad (34)$$

Уравнение теплоотдачи:

$$L_K - \frac{\alpha_{vL} \cdot (T - T_S) \cdot V}{r_G} = 0 \quad (35)$$

Уравнение теплоотдачи записано только для жидкой фазы, так как сопротивлением теплопереносу в газе в рассматриваемом случае можно пренебречь, поскольку в процессе интенсивного испарения в газовой фазе преобладает конвективный механизм переноса тепла и температура в паровом пузыре быстро выравнивается. Кроме того, энтальпия пара в

Рис.5. Принципиальная технологическая схема и применение диффузор-конфузорных трубчатых аппаратов (ноз. 1-4) в производстве СКЭПТ



большей степени заключена в скрытой теплоте фазового перехода, а вклад теплоемкости невелик. Это позволяет оперировать температурой насыщения пара, не вводя в рассмотрение температуру паровой фазы. То есть движущей силой процесса кипения является перегрев жидкости, или превышение температуры жидкости над температурой насыщения при поддерживаемом в системе давлении.

Процессы, протекающие в теплообменнике-конденсаторе описываются уравнениями материального баланса и фазового равновесия, предполагая, что между конденсатом и циркуляционным газом устанавливается фазовое равновесие при определенных температуре и давлении, поддерживаемых в теплообменнике.

$$L_G \cdot Y_I - L_{CG} \cdot Y_{CI} - L_K \cdot X_{KI} = 0 \quad (36)$$

$$L_G - L_{CG} - L_K = 0 \quad (37)$$

$$Y_{CI} = m_{KI} \cdot X_{KI} \quad (38)$$

На основе этой модели были проведены численные исследования конкретного производственного процесса получения каучука СКЭПТ. Сравнение результатов расчетов по модели с производственными данными по температуре показало хорошую корреляцию. Расчеты продемонстрировали, что значение температуры насыщения всегда лежит на несколько (2-4 градуса) градусов ниже реальной температуры в реакторе. Это еще раз подтверждает необходимость учета перегрева жидкости при моделировании процессов полимеризации, в которых теплоотвод осуществляется за счет кипения реакционной смеси или частичного испарения ее компонентов из объема.

Разработанная математическая модель позволяет также рассчитывать композиционный состав получаемого полимера, т.е. соотношение долей связанного этилена и пропилена в макромолекуле. Для этого используется формула Льюиса и Майо:

$$\chi = \frac{r_1 \cdot x_1 / x_2 + 1}{r_2 \cdot x_2 / x_1 + 1}, \quad \text{где } r_1 = \frac{k_1}{k_2}, \quad r_2 = \frac{k_2}{k_1}. \quad (39)$$

Входящие в это выражение концентрации мономеров в реакционной смеси определяются по математической модели. На основе проведенных расчетов была определена область допустимых исходных технологических параметров для получения качественного продукта (Рис.6). На этом графике область технологических параметров (а именно, расходов исходных компонентов), необходимых для нормальной работы реактора ограничивается следующими кривыми:

линии равных температур, ограничивающих температурный интервал в реакторе в пределах $40.5 \pm 1.5^\circ \text{C}$;

линии, определяющие композиционный состав полимера $\chi=0.8-2.4$.

При значениях технологических параметров, лежащих в указанной области, температура в реакторе будет соответствовать оптимальной для данного процесса, а состав получаемого каучука будет соответствовать интервалу характерному для большинства марок каучука СКЭПТ (содержание звеньев этилена от 45 до 70%).

Таким образом, можно сделать вывод, что предложенная модель позволяет с достаточной точностью прогнозировать температурный режим процесса получения каучука СКЭПТ и выбирать рациональные технологические параметры.

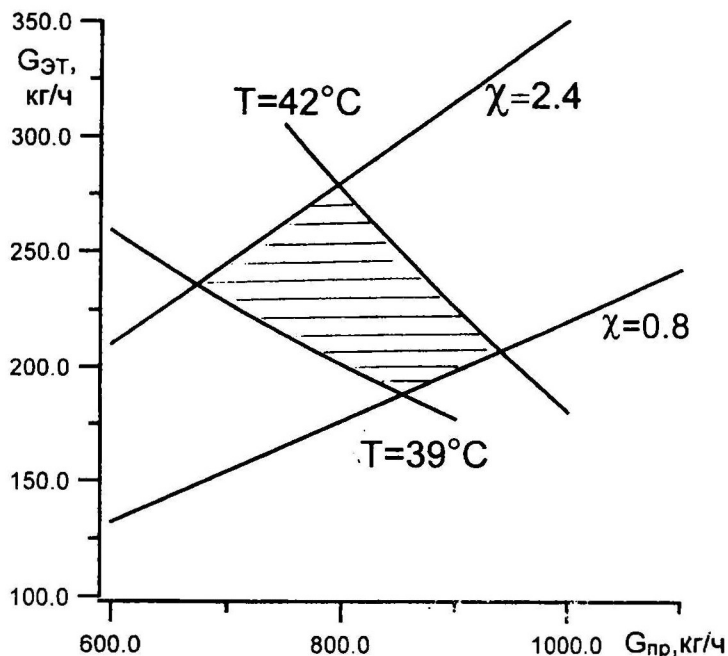


Рис.6. Область допустимых значений исходных технологических параметров.

На этом же производстве завода СК ОАО «Нижнекамскнефтехим» в технологию получения этилен-пропиленового синтетического каучука внедрена целая система аппаратов диффузор-конфузорного типа (Рис.5),

которые были рассчитаны с использованием разработанных в диссертации подходов при непосредственном участии соискателя. Необходимость оснащения основного полимеризатора предреактором на линии подачи и приготовления катализатора была вызвана следующими обстоятельствами.

Проведенные оценки показали, что характерное время роста полимерной цепи на два порядка превосходит характерное время смешения в полимеризаторе как на макро-, так и на микро-уровне. Это означает, что растущие полимерные цепочки распределены по объему аппарата достаточно однородно. Однако в то же время это вовсе не означает однородности распределения по объему реактора образующихся при инициировании активных центров, поскольку реакция инициирования является практически мгновенной и поэтому процесс инициирования лимитируется смешением компонентов. Если подавать катализатор и мономеры непосредственно в объемный реактор, как это делалось ранее, то концентрация вновь образующихся активных центров на микроуровне в месте ввода катализатора будет неоднородной, а поскольку, характерное время микро- и макросмешения в рассматриваемом реакторе имеют один и тот же порядок величины, то эти неоднородности распределения вновь образующихся активных центров будут распространяться по всему объему полимеризатора. Известно также наличие так называемого индукционного периода, во время которого срабатываются загрязнения, поступающие вместе с раствором катализатора (если таковые имеются, то они выступают в качестве так называемых ингибиторов). Продолжительность индукционного периода на многие порядки меньше времени роста полимерной цепи, однако параллельное протекание процессов полимеризации и ингибирования негативно сказывается на составе и качестве получаемого продукта.

В ходе производственных совещаний на заводе СК было выработано решение установить так называемый предреактор диффузор-конфузорной конструкции на линии подачи раствора катализатора, в котором при смешении его с определенным количеством растворителя, мономеров и сокатализатора образовывались бы активные центры, которые уже в готовом виде поступали бы в основной полимеризатор. Назначение данного предреактора состоит также в том, чтобы обеспечить протекание в нем индукционного периода и тем самым дезактивировать каталитические яды. Был проведен расчет предреактора диффузор-конфузорного типа исходя из условия, чтобы лимитирующее время турбулентного смешения (в данном случае микросмешения) было значительно меньше времени пребывания среды в нем. Это гарантирует то, что все потенциальные активные центры поступают в основной

полимеризатор уже в готовом виде. При этом предположение о модели идеального смешения в основном полимеризаторе оказывается оправданным. Подобный предреактор был спроектирован и внедрен в производство.

Входящая в формулу (29) математической модели основного полимеризатора концентрация активных центров A определяется концентрацией образовавшихся в предреакторе центров полимеризации по формуле $A = \gamma G_{\text{кат}} / G_p$.

Трубчатые аппараты диффузор-конфузорного типа рассчитаны, спроектированы и внедрены также в качестве смесителей для приготовления и подачи однородной реакционной смеси одинакового состава в четыре полимеризатора, работающих параллельно. Такие аппараты установлены также при входе шихты в каждый из полимеризаторов. Внедрение серии трубчатых турбулентных аппаратов диффузор-конфузорного типа в производство СКЭПТ повысило стабильность качества получаемой продукции, позволило снизить расход электроэнергии и повысить другие показатели производства, указанные в приложенном к диссертации акте внедрения.

На основе комплекса исследований при участии диссертанта была разработана, внедрена и освоена фактически новая технология производства СКЭПТ в газожидкостном экзотермическом реакторе с охлаждением за счет частичного испарения компонентов реакционного объема с использованием малогабаритных трубчатых турбулентных аппаратов диффузор-конфузорной конструкции.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Развита научная основа расчета и разработана новая математическая модель реактора с теплоотводом за счет частичного испарения компонентов из реакционного объема, в которой впервые учтены перегрев жидкости, наличие возвратного конденсата и циркуляционного газа. Разработанная математическая модель успешно апробирована на конкретном производственном процессе получения этилен-пропиленового синтетического каучука (СКЭПТ).
2. Впервые рассчитаны количественные значения перегрева реакционной смеси в зависимости от параметров ведения технологического процесса и проведено сравнение диапазонов устойчивой работы реакторов - полимеризаторов с кипением реакционной смеси и без него.
3. Развита научная основа расчета и проектирования высокоэффективных малогабаритных трубчатых турбулентных реакторов-смесителей. Впервые установлены количественные зависимости характеристик потока и турбулентного смешения от

геометрических размеров трубчатых аппаратов диффузор-конфузорного типа. Путем численного решения осредненных по Рейнольдсу уравнений движения сплошной среды и К-ε модели турбулентности получены поля следующих величин: осевой и радиальной скорости, давления, удельной кинетической энергии турбулентности, ее диссипации, а также других величин, которые выражаются через эти искомые функции (эффективный коэффициент вязкости, характерные времена турбулентного смешения и пр.)

4. Установлено, что трубчатые турбулентные аппараты диффузор-конфузорного типа по сравнению с обычными трубчатыми конструкциями цилиндрического типа обеспечивают многократное увеличение интенсивности турбулентности. В этих аппаратах высокая степень турбулизации среды по длине определяется геометрией диффузор-конфузорного канала, в то время как в аппаратах цилиндрического типа она резко снижается при удалении от входа. Данная закономерность обуславливает преимущества использования на практике реакторов-смесителей диффузор-конфузорной конструкции.
5. Получены следующие приближенные аналитические формулы для вычисления средних значений удельной кинетической энергии турбулентности, ее диссипации и характерных времен макросмешения, мезосмешения и микросмешения:

$$K_{cp} = k_1 u_0^2, \quad \varepsilon_{cp} = k_2 u_0^3/d, \quad D_{Tcp} = k_3 u_0 d, \quad t_{makro} = k_4 l^2/(u_0 d),$$

$$t_{mikro} = k_5 (vd/u_0^3)^{0.5}, \quad t_{mezo} = k_6 (l^2 d)^{1/3}/u_0$$

где k_i - зависящие только от соотношения геометрических размеров аппарата числовые коэффициенты, значения которых приведены в диссертации в виде аппроксимирующих зависимостей. Эти формулы составляют основу инженерного метода расчета трубчатых турбулентных аппаратов диффузор-конфузорного типа.

6. Исходя из критерия минимума среднего времени турбулентного смешения, получены следующие оптимальные соотношения геометрических размеров диффузор-конфузорного аппарата: отношение диаметров диффузора и конфузора = 1.6, отношение длины секции к диаметру диффузора = 1.7. Для обеспечения наиболее интенсивного смешения рекомендовано изготавливать промышленные реакторы-смесители с указанными конструктивными размерами.
7. Разработанные в диссертации научные подходы позволили рассчитать, спроектировать и внедрить в производство реакторы-смесители диффузор-конфузорной конструкции с оптимальными

параметрами. Подобные аппараты внедрены в качестве предреакторов и смесителей для приготовления и подачи исходных смесей в основной полимеризатор синтеза этилен-пропиленового каучука (СКЭПТ). При этом математическая модель основного полимеризатора, построенная с учетом влияния диффузионных сопротивлений на технологический процесс и особенностей его проведения при охлаждении экзотермического реактора за счет частичного испарения компонентов из реакционного объема, позволяет выбрать рациональные параметры технологического процесса получения СКЭПТ. Рассчитаны допустимые области режимных параметров ведения технологического процесса для получения более десяти марок каучука СКЭПТ. Экономический эффект внедрения составляет более 2.5 млн.руб. в год.

УСЛОВНЫЕ ОБОЗНАЧЕНИЯ

A - концентрация активных центров, моль/м³; **c** - удельная теплоемкость, Дж/кг К; **d** - диаметр конфузора, м; **d_L** - диаметр диффузора, м; **D_T** - коэффициент турбулентной диффузии, м²/с; **E** - энергия активации, Дж; **G** - массовый расход компонентов на входе в аппарат, кг/с; **H** - тепловой эффект химической реакции, Дж/кг; **k** - константа скорости реакции, м³/моль с; **k_B** - постоянная Больцмана, Дж/К; **K** - удельная кинетическая энергия турбулентности, м²/с; **l** - характерный линейный размер, м; **L₁** - массовый расход, кг/с; **L** - длина диффузор-конфузорной секции, м; **p** - давление, Па; **M** - молярная масса, кг/кмоль; **r** - радиальная координата, м; **r_A** - удельная теплота парообразования, Дж/кг; **t_{makro}** - характерное время макросмешения, с; **t_{mikro}** - характерное время микросмешения, с; **t_{mezo}** - характерное время мезосмешения, с; **T** - температура, К; **T_S** - температура насыщения, К; **u** - осевая скорость, м/с; **u₀** - среднерасходная скорость в узком сечении диаметром **d**, м/с; **V** - объем реакционной смеси, м³; **v** - радиальная скорость, м/с; **X** - концентрации в жидкости (реакционной смеси), массовые доли; **Y** - концентрации в газе, массовые доли; **z** - продольная координата, м; **α** - угол расширения диффузора, град.; **α_{VL}** - объемный коэффициент теплоотдачи в жидкости, Вт/м³К; **β_{VL}** - объемный коэффициент массоотдачи, 1/с; **χ** - композиционный состав сополимера; **γ** - коэффициент расхода катализатора; **ε** - диссипация удельной кинетической энергии турбулентности, м²/с³; **μ** - эффективный динамический коэффициент вязкости, Па с; **μ_M** - динамический коэффициент вязкости, Па с; **μ_T** - динамический коэффициент турбулентной вязкости, Па с; **ν** - кинематический коэффициент вязкости, м²/с; **ν_T** - кинематический

коэффициент турбулентной вязкости, $\text{м}^2/\text{с}$; ρ - плотность, $\text{кг}/\text{м}^3$; τ - тензор напряжений, Па; ω - скорость химической реакции, $\text{кг}/\text{м}^3\text{с}$;
Индексы: $i=1, \dots, M$ - газообразные мономеры, $i=M+1, \dots, N-2$ - жидкие мономеры, $i=N-1$ - растворитель, $i=N$ - полимер, CG - циркуляционный газ, G - газ, K - конденсат, P - растворитель, R - полимеризат.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ ОПУБЛИКОВАНО В СЛЕДУЮЩИХ РАБОТАХ

1. Дьяконов С.Г., Фарахов М.И., Тахавутдинов Р.Г., Альтапов А.Р. Тепло- и массоперенос в присутствии химической реакции в барботажном слое. //Труды Минского международного форума по тепломассообмену «Тепломассообмен ММФ-92», Минск, 1992, Т.11, с.199-202.
2. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Израйлев Б.М., Гавриков С.Ю. Моделирование тепломассообмена с химическим превращением в реакторе. Сб. тезисов IX-ой Международной конференции молодых ученых по химии и химической технологии. Москва, 1995, Т.II, с.105.
3. Клинов А.В., Сахапов Г.З., Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Курочкин Л.М. О влиянии концентрации полимера в растворе на кинетику процесса переноса // Массообменные процессы и аппараты химической технологии: Межвуз. тематич. сб. научн. тр. - Казань. 1995. С. 2-5.
4. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г., Сахапов Г.З., Курочкин Л.М. О влиянии вязкости раствора полимера на макрокинетику процесса полимеризации // Массообменные процессы и аппараты химической технологии: Межвуз. тематич. сб. научн. тр. - Казань. 1995. С. 6-9.
5. Дьяконов Г.С., Израйлев Б.М., Тахавутдинов Р.Г., Гавриков С.Ю. Моделирование тепломассопереноса и химического превращения с тепловым эффектом в реакторе. //Труды III-го Минского международного форума по тепломассообмену «Тепломассообмен ММФ-96», Минск, 1996, Т.3, с.226-230.
6. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г. Расчет композиционного состава сополимеров в промышленных реакторах. Сб. тезисов II-ой Республиканской научной конференции молодых ученых и специалистов, Казань, 1996, т.5, с.25.
7. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Курочкин Л.М., Сахапов Г.З. Расчет композиционного состава сополимеров. //Тезисы докладов IV-ой конференции по интенсификации нефтехимических процессов "Нефтехимия -96", г.Нижнекамск, 1996, с.249.

8. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г., Курочкин Л.М. Моделирование и расчет процесса сополимеризации этилена с пропиленом// Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 1997, С. 45-46.
9. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г., Клинов А.В. Зависимость композиционного состава сополимера от диффузионных сопротивлений переносу мономеров в пограничном слое. // Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 1997, С. 46.
10. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г. Расчет зависимости поля температуры от времени в элементе дисперсии с химической реакцией. // Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 1997, С. 47.
11. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г. Расчет кинетических констант параллельных химических реакций по экспериментальным изотермам и построение адиабаты процесса.//Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 1997, С. 48.
12. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Курочкин Л.М., Мухаметзянова А.Г. Взаимосвязанные процессы переноса и химического превращения в полимеризаторах при производстве синтетических каучуков // Вестник Казанского технологического университета. №1, Казань. 1998. С. 70-75.
13. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г. Композиционный состав сополимера у межфазной поверхности.//В сб. Тепломассообменные процессы и аппараты химической технологии. Казань: 1998, с. 30-36.
14. Аверко - Антонович И.В., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Температурный режим полимеризатора с кипением реакционной смеси.//В сб. Тепломассообменные процессы и аппараты химической технологии. Казань: 1998, с. 102-109.
15. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Курочкин Л.М., Мухаметзянова А.Г. Тепломассоперенос при химических превращениях в полимеризаторе синтеза этилен-пропиленового каучука.// Труды II-ой Российской национальной конференции по теплообмену, Москва: 1998, т.3, с.198-201.
16. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Аверко - Антонович И.В. Тепломассоперенос при химических превращениях в процессах полимеризации при кипении реакционной смеси// Труды II-ой

- Российской национальной конференции по теплообмену, Москва: 1998, т.3, с.194-197.
17. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г., Курочкин Л.М.. Взаимосвязанные процессы переноса и химического превращения в полимеризаторах при производстве синтетических каучуков.// Тезисы доклада на секции «Состояние и развитие производства химических продуктов» XVI-го Менделеевского съезда по общей и прикладной химии, Санкт-Петербург – Москва, 1998, Т.2, с.60
 18. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Мухаметзянова А.Г., Курочкин Л.М.. Взаимосвязанные процессы переноса и химического превращения в полимеризаторах при производстве синтетических каучуков. //Тезисы доклада на секции «Материалы будущего и нетрадиционные химические технологии» XVI-го Менделеевского съезда по общей и прикладной химии, Санкт-Петербург – Москва, 1998, Т.2, с.290-291.
 19. Дьяконов Г. С., Тахавутдинов Р. Г., Аверко-Антонович И. В. Модель полимеризатора с кипением реакционной смеси.// Деп. в ВИНТИ №2641-В98, Москва, 1998.
 20. Аверко-Антонович И. В., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Разработка автоматизированного лабораторного реактора-полимеризатора для экспериментального исследования процесса теплообмена при химических превращениях // Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 1998. С. 82.
 21. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Аверко - Антонович И.В. Полимеризация при кипении реакционной смеси.// Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань: 1999, с.55.
 22. Тахавутдинов Р.Г., Дияров И.И., Дьяконов Г.С., Исследование реактора синтеза деэмульгаторов на основе окисей этилена и пропилена// Тезисы докладов V-ой конференции по интенсификации нефтехимических процессов «Нефтехимия-99». Нижнекамск: 1999, т.2, с.188-190.
 23. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Аверко - Антонович И.В. Температурная устойчивость полимеризатора с кипением реакционной смеси.// Тезисы докладов V-ой конференции по интенсификации нефтехимических процессов «Нефтехимия-99». Нижнекамск: 1999, т.2, с.192-193.
 24. Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Численное моделирование гидродинамики сред в полимеризаторах. // Тезисы докладов V-ой

- конференции по интенсификации нефтехимических процессов «Нефтехимия-99». Нижнекамск: 1999, т.2, с.194-195.
25. Дияров И.И., Дьяконов Г.С. Тахавутдинов Р.Г., Хамидуллин Р.Ф. Моделирование процесса перемешивания в полимеризаторах.// Труды XII-ой Международной научной конференции «Математические методы в технике и технологиях», Новгород: 1999, т.2, с.80-82.
26. Дияров И.И., Дьяконов Г.С. Тахавутдинов Р.Г., Хамидуллин Р.Ф. Физическое моделирование гидродинамических процессов в реакторах с мешалкой.// Труды XII-ой Международной научной конференции «Математические методы в технике и технологиях», Новгород: 1999, т.4, с.90-91.
27. Тахавутдинов Р.Г. Численное моделирование гидродинамики сред в полимеризаторах. Труды V-ой Международной научной конференции «Методы кибернетики химико-технологических процессов». Казань: 1999, с.6-8.
28. Аверко - Антонович И.В., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Устойчивость полимеризатора с кипением реакционной смеси. Труды V-ой Международной научной конференции «Методы кибернетики химико-технологических процессов». Казань: 1999, с.31.
29. Дьяконов С.Г., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Процессы переноса и химического превращения в полимеризаторах при производстве синтетических каучуков.// Труды V-ой Международной научной конференции «Методы кибернетики химико-технологических процессов», Москва: 1999, с.78-90.
30. Аверко - Антонович И.В., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Температурный режим полимеризатора с кипением реакционной смеси с учетом перегрева. Химическая промышленность. 1999, №.5, с. 326-330.
31. Тахавутдинов Р.Г. Характеристики турбулентного смешения в малогабаритных трубчатых аппаратах// Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 2000, С. 80.
32. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Аверко-Антонович И. В. Математическая модель реактора-полимеризатора для производства СКЭПТ// Аннотации сообщений итоговой Научной сессии Казанского государственного технологического университета, Казань, 2000, С. 81.
33. Минскер К.С., Гильмутдинов Н.Р., Иштерьяков А.Д., Дебердеев Р.Я., Шияпов Р.Т., Дьяконов Г.С., Софронова О.В., Тахавутдинов Р.Г., Берлин Ал.Ал. Энерго- и ресурсосберегающая технология нового поколения производства галобутилкаучука и других хлорированных

- каучуков. Химия и химическая технология – настоящее и будущее. Сб. научных трудов. Изд. РИО СПИ, г. Стерлитамак, 2000, с.22-34.
34. Аверко-Антонович И. В., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С. Исследование температурной устойчивости полимеризатора с кипением реакционной смеси с учетом перегрева //Труды IV-го Минского Международного Форума по теплообмену «Тепломассообмен ММФ-2000», Минск, 2000, Т. 11, с.64-72.
35. Решение о выдаче Свидетельства на полезную модель от 8 февраля 2000 г. «Устройство для непрерывной растворной сополимеризации»/ Курочкин Л.М., Дебердеев Р.Я., Минскер К.С., Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г. и др./ по заявке №2000100509/20.
36. Takhavoutdinov R.G. Computations of Axisymmetric Flows in Pipe Expansions. The PHOENICS Journal of Computational Fluid Dynamics and its Applications, 2000, V. 12, N. 4, pp. 80-95.
37. Минскер К.С., Берлин Ал.Ал., Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С., Захаров В.П. Автомодельный режим течения потоков в трубчатых турбулентных аппаратах струйного типа. Доклады АН, 2000, т.372, №3.
38. Дьяконов Г.С., Тахавутдинов Р.Г., Курочкин Л.М., Мухаметзянова А.Г. Влияние диффузионных сопротивлений на перенос мономеров у межфазной поверхности. Теоретические основы химической технологии. 2000, т.34, №1. С 82-86.
39. Тахавутдинов Р.Г., Дьяконов Г.С., Дебердеев Р.Я., Минскер К.С. Турбулентное смешение в малогабаритных трубчатых аппаратах химической технологии. Химическая промышленность. 2000, №5, с.41-49.

Соискатель



Р.Г. Тахавутдинов

Лицензия № 189 от 28.05.97 г.

Сдано в набор 29.05.2000 . Подписано к печати 30.05.2000.

Печать RISO. Бумага офсет № 1. Формат 60х84 1/16

Усл. печ. л. 2. Тираж 100. Заказ 64

Издательство “Мастер Лайн”, г. Казань, ул. Б. Красная, 55, ком. 003

Отпечатано на полиграфическом участке издательства

2-00